

EUROPEAN PATENT OFFICE

Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 07228761
PUBLICATION DATE : 29-08-95

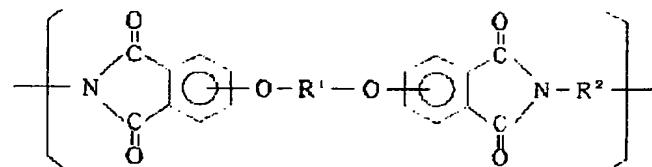
APPLICATION DATE : 18-02-94
APPLICATION NUMBER : 06021212

APPLICANT : TOYOB0 CO LTD;

INVENTOR : OKAMOTO MASAMI;

INT.CL. : C08L 67/02 B29C 45/00 // (C08L 67/02
, C08L 79:08) B29K 67:00 B29K
79:00

TITLE : POLYESTER RESIN COMPOSITION
AND ITS MOLDING



ABSTRACT : PURPOSE: To obtain a polyester resin compsn. which gives a highly elastic molding excellent in heat resistance and tensile characteristics by compounding a specific copolyester with a polyetherimide or its copolymer.

CONSTITUTION: This polyester resin compsn. comprises a copolyester mainly comprising ethylene terephthalate units and ethylene naphthalate units in a molar ratio of the former units to the latter of (95:5)-(70:30) and a polyetherimide having ether and imide units of the formula (wherein R¹ is a 6-30C divalent arom. group; and R² is a 6-30C divalent arom. group or a polyorganosiloxane group with terminals blocked by 2-20C alkylene groups, cycloalkylene groups, or 2-8C alkylene groups) or its copolymer. The compsn. is pref. injection molded into an automotive part.

COPYRIGHT: (C)1995,JPO

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平7-228761

(43) 公開日 平成7年(1995)8月29日

(51) Int.Cl.⁶
C 08 L 67/02
B 29 C 45/00
// (C 08 L 67/02
79:08)
B 29 K 67/00

識別記号 LPK
府内整理番号 8823-4F

F I

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数2 OL (全5頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平6-21212

(22) 出願日 平成6年(1994)2月18日

(71) 出願人 000003160
東洋紡績株式会社
大阪府大阪市北区堂島浜2丁目2番8号
(72) 発明者 木南 信之
滋賀県大津市堅田二丁目1番1号 東洋紡
績株式会社総合研究所内
(72) 発明者 楠 進
滋賀県大津市堅田二丁目1番1号 東洋紡
績株式会社総合研究所内
(72) 発明者 奥山 智子
滋賀県大津市堅田二丁目1番1号 東洋紡
績株式会社総合研究所内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ポリエステル樹脂組成物およびその成形品

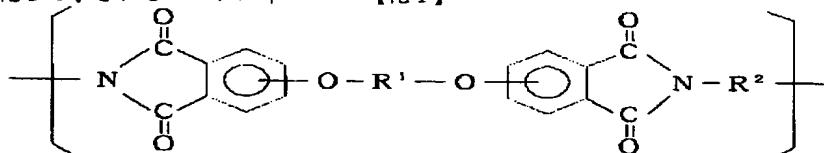
(57) 【要約】

【目的】 衝撃強度、強伸度特性が優れ、高い耐熱性を有し、大型射出成形に適する組成物およびその成形品を得ること。

【構成】 (a) 主として、エチレンテレフタレート単位とエチレンナフタレート単位とからなる共重合ポリエス

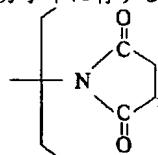
テルおよび (b) 下記一般式化1で示されるエーテル單位とイミド単位とを一分子中に有するポリエーテルイミドまたはその共重合体を含む組成物であって、前記(a)成分のエチレンテレフタレート単位とエチレンナフタレート単位のモル比が95:5~70:30であることを特徴とするポリエステル樹脂組成物およびそれを射出成形して得られる自動車用部品。

【化1】



【特許請求の範囲】

【請求項1】 (a) 主として、エチレンテレフタレート単位とエチレンナフタレート単位とからなる共重合ポリエステルおよび(b) 下記一般式化1で示されるエーテル単位とイミド単位とを一分子中に有するポリエーテル



10

(式中、R¹は炭素原子数6～30の二価の芳香族有機基、R²は炭素原子数6～30の二価の芳香族有機基、炭素原子数2～20のアルキレン基もしくはシクロアルキレン基または炭素原子数2～8のアルキレン基で連鎖停止されたポリオルガノシロキサン基を表す)

【請求項2】 請求項1記載のポリエステル樹脂組成物を射出成形して得られる自動車用部品。

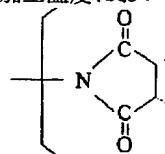
【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、耐衝撃性、耐熱性および成形品外観の良好な成形品を提供することのできるポリエステル樹脂組成物に関するものであり、該組成物は、良好な相溶性と改良された機械的特性を示し、寸法安定性が非常に優れているので、例えば、自動車部品などの外装品、事務機器のハウジング等に利用される。

【0002】

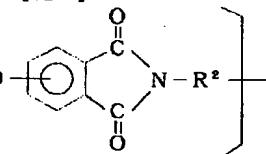
【従来の技術】近年、ポリマーブレンドの研究が飛躍的に進歩し高衝撃性や高耐熱性を有する多成分系樹脂組成物が開発されている。ポリエステル、とりわけポリエチレンテレフタレート(PET)に代表されるポリエステル及びその共重合体は成形材料としては脆性破壊することがよく知られており、大型部品等への用途展開が極めて困難であった。そこでこれらの問題点を解決するために、例えばポリカーボネート系樹脂、ポリアリレート系樹脂等とのブレンドが行われているが、これらは特に耐熱性を改良することが主な目的であった。しかし、PETとポリカーボネート及びポリアリレートとの組合せなる組成物は、高温、特に成形加工温度において、エス



(式中、R¹は炭素原子数6～30の二価の芳香族有機基、R²は炭素原子数6～30の二価の芳香族有機基、炭素原子数2～20のアルキレン基もしくはシクロアルキレン基または炭素原子数2～8のアルキレン基で連鎖停止されたポリオルガノシロキサン基を表す)

ルイミドまたはその共重合体を含む組成物であって、前記(a)成分のエチレンテレフタレート単位とエチレンナフタレート単位のモル比が95：5～70：30であることを特徴とするポリエステル樹脂組成物。

【化1】



10

ル交換反応の進行を防ぐことが出来ず、その結果機械的強度が低下するという欠点を有している。従来より、PETの耐熱性等の向上の目的から前述のような非晶性、高ガラス転移温度(Tg)を有する樹脂との組合せが検討されてきているが、極めて非相溶な組合せが多く、さらなる問題として界面の安定化を図る必要があり、満足出来る機械的強度が得られないのが現状である。

【0003】

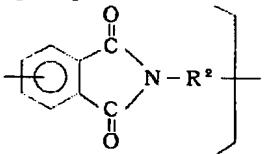
【発明が解決しようとする課題】本発明は前記従来技術における欠点に着目してなされたものであって、成形性が良好で、且つ耐熱性、強伸度特性に優れた高弾性の成形体を与えるポリエステル樹脂組成物を提供することを課題とするものである。

【0004】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、前記課題を解決するため鋭意・研究・検討した結果、遂に本発明を完成するに到った。すなわち本発明は、(a)主として、エチレンテレフタレート単位とエチレンナフタレート単位とからなる共重合ポリエステルおよび(b)下記一般式化2で示されるエーテル単位とイミド単位とを一分子中に有するポリエーテルイミドまたはその共重合体を含む組成物であって、前記(a)成分のエチレンテレフタレート単位とエチレンナフタレート単位のモル比が95：5～70：30であることを特徴とするポリエステル樹脂組成物およびそれを射出成形して得られる自動車用部品である。

【0005】

【化2】



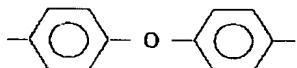
【0006】以下、本発明に係る樹脂組成物の各構成成分について詳述する。まず(a)成分である共重合ポリエステルは、具体的にはエチレンテレフタレート単位とエチレンナフタレート単位とのモル比が95：5～70：30の共重合体であって、(b)成分との相溶性を

そこなわない程度に他の酸成分やグリコール成分、たとえばイソフタル酸、P-オキシ安息香酸、アジピン酸、セバシン酸の様な酸成分、ヘキサメチレングリコール、ジエチレングリコール、ネオペンチルグリコール、ビスフェノールA、ネオペンチルグリコールアルキレンオキシド付加体の様なグリコール成分を共重合してもかまわない。また該共重合ポリエステルは、フェノールノテトラクロロエタン混合溶媒(6/4重量比)中、30℃で測定される固有粘度が0.5~2.0程度、特に0.6~1.5(d1/g)の範囲のものが好ましい。

【0007】次に(b)成分であるポリエーテルイミド樹脂は、具体的には前記一般式化2で示されるものであり、化2におけるR¹は下記化3~8で示される基が挙げられる。なお本発明において特に好ましくは化9で示される樹脂であり、これはゼネラルエレクトリック社より“ULTEM”の商品名で市販されている。

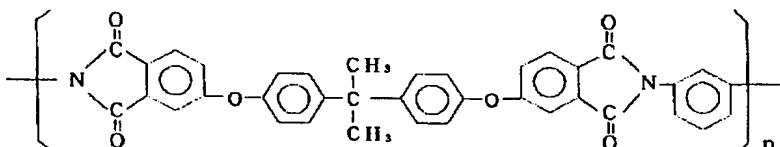
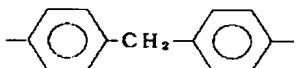
【0008】

【化3】



【0009】

【化4】

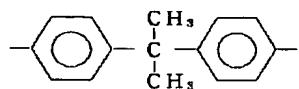


【0015】本発明において、(a)成分と(b)成分との配合比率は、成形体の用途、目的に応じて幅広い範囲から選定することができる。その比率は重量比で5:9.5~9.5:5であり、好ましくは2.0:8.0~8.0:2.0である。具体的には、耐熱性の要求されるような用途、例えばランプカバーやエンジン回りのコネクター等には(b)成分が多い方が良く、(a)成分:(b)成分は5.0:5.0~1.0:9.0が好ましい。一方、耐薬品性や耐衝撃性の要求される用途、例えばリフレクター、ドアハンドル、サイドモール、リアスピライラー、フロントエプロン等には、(a)成分:(b)成分は1.0:9.0~5.0:5.0が好ましい。なお本発明組成物は前記各成分の配合比を種々変えることにより、前記以外の用途、例えば電磁バルブ、エアコンノブ、ルーバー等の空調系部品、ボルテージレギュレーター、ディストリビューター、フォグラム、ヘッドラム、ワイパーモーターケース等の電装部品等に好適に用いられる。

【0016】次に本発明組成物を得る方法としては、常

【0010】

【化5】



【0011】

【化6】



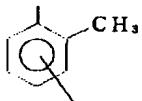
【0012】

【化7】



【0013】

【化8】



【0014】

【化9】

用の混合装置、例えばローラーニーダー及び单一または多重スクリュー押出機、特に2軸スクリュー押出機及びニーダーを用いて、前記各(a)成分、及び(b)成分を一緒に溶融混合する方法、又は(b)成分を先に溶融し、次にその溶媒中へ(a)成分を溶融混合する方法等いずれも可能である。

【0017】本発明組成物は、常用の添加剤、例えば滑剤及び離型剤、該形成剤、安定剤、及び補強材、難燃剤及び、染料や顔料を配合することができ、特に好ましい補強材としては、ガラス繊維、ガラスピーブーズ、マイカ、シリケート、石英、タルク、二酸化チタン、珪石灰などが挙げられる。これら添加剤は、全組成物に対して1~5.0重量%、特に1.0~4.0重量%を配合することができる。また本発明組成物の難燃性を向上させるために、難燃剤を全組成物に対して3.0重量%以下配合してもよく、難燃剤としては、例えばポリハロゲンジフェニル、ポリハロゲンジフェニルエーテル、ポリハロゲンフタル酸とその誘導体、及びポリハロゲン化ポリカーボネ

ト、ポリハロゲン化ポリスチレン等があり、そのうち臭素含有化合物が特に有効である。さらに通常の相乗、例えば、三酸化アンチモンを含有するのが好ましい。

【0018】

【作用】本発明組成物が優れた強度、耐熱性および耐衝撃性を有している理由としては、(a) 成分である共重合ポリエステルのエチレンテレフタレート単位とエチレンナフタレート単位とのモル比が 95 : 5 ~ 70 : 30 であると (a) 成分と (b) 成分とが部分的に相溶することが認められ、つまり (a) 成分中の共重合比率が (b) 成分との相溶性に大きく関与し、高強度や高耐熱性さらには耐衝撃性を発現させているものと思われる。従って、モル比が 95 : 5 より小さな領域では (a) 成分と (b) 成分とは極めて非相溶となり力学特性の低下をきたし、一方 70 : 30 以上の比率になると両成分が完全に相溶してしまい、(a) 成分が結晶化出来なくなり、逆に耐熱性が低下してしまうので好ましくない。

【0019】

【実施例】本発明組成物を実施例に基づき具体的に説明するが本発明はこれらに限定されるものではない。尚、実施例及び比較例中の引張強度は ASTM-D 638、曲げ強度、弾性率は ASTM-D 790、熱変形温度は

ASTM-D 698、また、落錐衝撃強度については D u p o n t 式落錐衝撃試験に基づいて測定し、材料が破壊を起こさない領域での最大吸収エネルギー値を示した。(試料の厚みは 1 / 8 インチ、シリンダー先端径は 3.2 mm、受台径は 8 mm である。)

【0020】実施例 1、2、比較例 1、2

(a) 成分としてエチレンテレフタレートとエチレンナフタレートとの共重合体を常法により表 1 に示すモル比となるように合成した共重合ポリエステルを用い、

(b) 成分として前記一般式化 9 で示されるポリエーテルイミド樹脂、ウルテム-1000 (ゼネラルエレクトリック社製) を用いた。(a) 成分と (b) 成分とをそれぞれ表 2 に示す配合比で 30 mm φ 2 軸押出機を使用してシリンダー温度 300 °C で混練押出しペレットとし、このペレットを 100 °C で真空乾燥を 4 時間行った後、射出成形して成形品とした。金型温度は 80 °C であった。得られた成形品を 160 °C において 4 時間熱処理をして (a) 成分を充分結晶化させた後に各物性を測定した。その結果を表 2 に示す。尚表中の割合はいずれも重量 % である。

【0021】

【表 1】

No.	PET/PEN 単位 (モル比)	極限粘度 (d ₂ /g)
A 1	100/0	0.62
A 2	90/10	0.62
A 3	80/20	0.72
A 4	60/40	0.89

【0022】

【表 2】

	実施例 1	実施例 2	比較例 1	比較例 2
(a) 成分	A 2	A 3	A 1	A 4
重量比 (a) : (b)	50 : 50	40 : 60	50 : 50	40 : 60
引張強度 (kgf/cm ²)	700	850	300	600
引張伸度 (%)	15	30	1.0	1.0
曲げ強度 (kgf/cm ²)	1200	1350	600	800
曲げ弾性率 (kgf/cm ²)	34000	35000	29000	30000
落錐衝撃強度 (kgf/cm ²)	120	200	5	20
熱変形温度 (°C) (18.6 kg/cm ² 荷重)	155	160	120	98

【0023】

【発明の効果】表 2 より明らかのように (a) 成分中の PET/PEN の比率が 90/10、80/20 の共重合体を用いた本発明組成物が強度伸度、弾性率が高く、また落錐衝撃強度も高いことにより延性的な破壊挙動を

示していることが判る。また本発明組成物は、高耐熱性を有しているので、熱応力を受ける材料、例えば自動車部品等の大型射出成形部品に適しており、産業界に寄与すること大である。

フロントページの続き

(51) Int. Cl. ⁶ 識別記号 庁内整理番号 F I 技術表示箇所
B 29 K 79:00

(72) 発明者 岡本 正巳
滋賀県大津市堅田二丁目1番1号 東洋紡
績株式会社総合研究所内